

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-060211

(43)Date of publication of application : 26.02.2002

(51)Int.Cl.

C01B 31/02

(21)Application number : 2000-245739

(71)Applicant : NATIONAL INSTITUTE OF
ADVANCED INDUSTRIAL &
TECHNOLOGY

(22)Date of filing : 14.08.2000

(72)Inventor : NAKAMURA TAKAKO
KOGA YOSHINORI
ISHIKAWA KEIICHIRO
OOHANA TSUGUYORI
ISHIHARA MASANORI
FUJIWARA SHUZO

(54) METHOD FOR PRODUCING HETERO-FULLERENE PART OF CARBON SKELETON OF WHICH IS SUBSTITUTED WITH BORON AND NITROGEN

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an industrially advantageous method for producing hetero- fullerene in higher yield by substituting part of the carbon skeleton with boron and nitrogen.

SOLUTION: This hetero-fullerene producing method comprises reacting fullerene with boron nitride under irradiation with a laser beam.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 14.08.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3353068

[Date of registration] 27.09.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-60211

(P2002-60211A)

(43) 公開日 平成14年2月26日 (2002.2.26)

(51) Int.Cl.⁷

C 0 1 B 31/02

識別記号

1 0 1

F I

C 0 1 B 31/02

テマコード* (参考)

1 0 1 F 4 G 0 4 6

審査請求 有 請求項の数 2 O L (全 3 頁)

(21) 出願番号 特願2000-245739 (P2000-245739)

(22) 出願日 平成12年8月14日 (2000.8.14)

(71) 出願人 301021533

独立行政法人産業技術総合研究所

東京都千代田区霞が関 1-3-1

(72) 発明者 中村 挙子

茨城県つくば市東1丁目1番 工業技術院

物質工学工業技術研究所内

(72) 発明者 古賀 義紀

茨城県つくば市東1丁目1番 工業技術院

物質工学工業技術研究所内

(72) 発明者 石川 啓一郎

茨城県つくば市東1丁目1番 工業技術院

物質工学工業技術研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンをより高められた収率で得ることのできる工業的に有利なヘテロフラレンの製造方法を提供する。

【解決手段】 炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンを製造するに当たり、フラレンと窒化ホウ素をレーザー照射下で反応させる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンを製造するに当たり、フラレンと窒化ホウ素をレーザー照射下で反応させることを特徴とする、ヘテロフラレンの製造方法。

【請求項2】レーザー光がパルス光であることを特徴とする請求項1のヘテロフラレンの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】ダイヤモンド、グラファイトに次いで第3の炭素同素体であるフラレンは、その大量合成法が開発されて以来、その特異な構造、性質から種々の分野において注目されている。そして、その炭素骨格の一部をホウ素、窒素などで置換させたヘテロフラレンは、超伝導、強磁性、耐食性、超高硬度性、非線形特性などの新規な物理的、化学的性質が期待されている。

【0003】しかしながら、従来、炭素骨格の一部をホウ素及び窒素の二つの元素で実質的に置換させたヘテロフラレンの具体的な報告例は極めて少なく、わずかに、本発明者らが提案した特開平11-60222号公報などがあるに過ぎない。この公報記載の発明は、「アルゴン雰囲気下で、ホウ素と窒素含有グラファイトをパルスレーザー照射下にアブレーションさせるか、或いは窒素雰囲気下で、ホウ素含有グラファイトをパルスレーザー照射下にアブレーションさせて、上記ヘテロフラレンを製造する」ものである。この発明によれば、ホウ素と窒素の2種類の元素を置換させたヘテロフラレンを得ることができるものの、その後の本発明者らの検討によれば、目的とするヘテロフラレンの生成量が十分でなく、このものを用いた種々の応用を図る上で若干の問題点があることが判明した。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記事情の下でなされたものであって、特開平11-60222号記載の発明を更に発展させ、炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンをより高収率で得ることのできる工業的に有利なヘテロフラレンの製造方法を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、原料として、フラレンと窒化ホウ素を選定し、これらの系にレーザー光を照射すると、高収率で炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンが得られることを知見し、本発明を完成するに至った。即ち、本発明によれば、第一に、炭素骨格の一部がホウ素及び窒素で置換されたヘテロフラレンを製造するに当たり、フラ

レンと窒化ホウ素をレーザー照射下で反応させることを特徴とする、ヘテロフラレンの製造方法が提供される。第二に、第一の製造方法において、レーザー光がパルス光であることを特徴とするヘテロフラレンの製造方法が提供される。

【0006】本発明の原料であるフラレンとしては、従来公知のものが全て使用できる。このようなフラレンとしては、C₆₀が代表的なものであるが、本発明ではこれに限定されず、C₇₀などの炭素数が60以上のフラレンも使用することができる。またこれらの2種以上の混合物であっても差し支えない。これらのフラレンは周知のように、炭素質系材料を出発原料とする、レーザー気化法、アーク放電法、プラズマ放電法、燃焼法、放電プラズマ法などにより合成される。

【0007】本発明で用いる他方の原料である窒化ホウ素は、純度の高いものが好ましく使用されるが、反応を阻害しない範囲であれば、鉄、クロム、ニッケル、酸化ホウ素などの不純物を含有したものも使用できる。

【0008】フラレンと窒化ホウ素の使用割合は、目的とするヘテロフラレンに含有される、ホウ素及び窒素の置換割合に応じて適宜定められる。例えば、(ホウ素及び窒素の炭素に対する含有量が1:1:58の割合のヘテロフラレンを合成する場合)には、フラレンと窒化ホウ素の使用割合は1:571とされる。

【0009】本発明においては、これらの原料系は、レーザー照射する前に、予め溶媒に溶解若しくは懸濁・分散させておくことが好ましい。このような溶媒としては、例えば、ヘキサン、トルエン等の広範囲な有機溶媒が使用できる。

【0010】次いで、本発明においては、好ましくは溶媒に溶解若しくは懸濁・分散させた、フラレンと窒化ホウ素からなる原料系に、レーザー光を照射する。レーザー光は、連続光でもパルス光であってもよいが、パルス光を用いることが高収率の点からみて好ましい。このようなレーザー光としては、エキシマレーザー、窒素レーザーまたはNd:YAGレーザー等が挙げられる。また、波長は広範囲の波長の光を利用できるが、反応の高効率化のためには、ArF(193nm)、KrF(248nm)、XeClエキシマレーザー(308nm)、Nd:YAGレーザーにおいては第3高調波(355nm)、または第4高調波(266nm)の波長を用いることが好ましい。

【0011】本発明の反応温度は任意に設定されるが、光照射下でのフラレンと窒化ホウ素との反応は加熱しなくても進行するので、通常は室温下で行われる。

【0012】本発明の反応は、不活性ガスの雰囲気下で行うのが望ましく、特にラジカル反応を経由して進行する可能性があることから、アルゴン、または窒素雰囲気下で行うことが好ましい。

【0013】

【実施例】以下、本発明を実施例により更に詳細に説明する。

【0014】実施例1

C₆₀のヘキサン溶液(2×10⁻⁴mol/l, 7ml)に窒化ホウ素(0.8mmol)を入れて懸濁液を調製した。この懸濁液を合成石英製の反応容器に入れ、アルゴン雰囲気下で攪拌しつつKrFエキシマレーザー(248nm, 1Hz, 200mJ/cm²)を室温で1時間照射した。その後、沈殿物を除去し、沈殿物からピリジン抽出を行い、得られた抽出液をHPLCで分離精製し、FAB-MS測定を行った。図1に示すように、質量数721にホウ素および窒素置換フラレンBNC₅₈の生成が確認された。収率30%。

【0015】実施例2

C₇₀のヘキサン溶液(2×10⁻⁴mol/l, 7ml)に窒化ホウ素(0.8mmol)を入れて懸濁液を調製した。この懸濁液を合成石英製の反応容器に入れ、アルゴン雰囲気下で攪拌しつつKrFエキシマレー

ザー(248nm, 1Hz, 200mJ/cm²)を室温で1時間照射した。その後、沈殿物を除去し、沈殿物からピリジンで抽出を行い、得られた抽出液をHPLCで分離精製し、FAB-MS測定を行った。質量数841にホウ素および窒素置換フラレンBNC₆₈の生成が確認された。

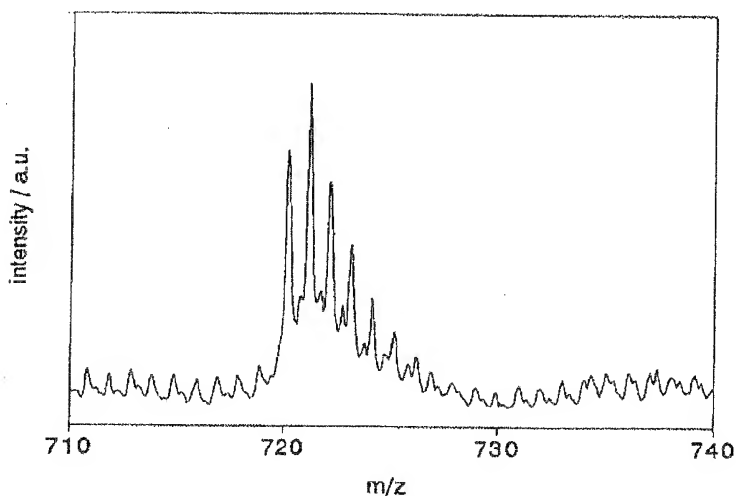
【0016】

【発明の効果】以上説明したように、本発明に従うと、レーザー照射下にフラレンおよび窒化ホウ素の反応を行うことにより、従来、大量合成の困難であった、炭素骨格の一部がホウ素及び窒素の2種類の元素で置換されたヘテロフラレンの製造が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】C₆₀および窒化ホウ素のヘキサン懸濁液をアルゴン雰囲気下、室温でKrFエキシマレーザー(248nm)を照射した場合の、生成物の質量スペクトルである。

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 大花 継頼
茨城県つくば市東1丁目1番 工業技術院
物質工学工業技術研究所内

(72)発明者 石原 正統
茨城県つくば市東1丁目1番 工業技術院
物質工学工業技術研究所内

(72)発明者 藤原 修三
茨城県つくば市東1丁目1番 工業技術院
物質工学工業技術研究所内

Fターム(参考) 4G046 CB01 CC03